copy for the Elected Office (EO/US)

P ENT COOPERATION TREA

	From the INTERNATIONAL BUREAU	
PCT	То:	
NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE (PCT Rule 92bis.1 and Administrative Instructions, Section 422) Date of mailing (day/month/year) 18 juillet 2001 (18.07.01)	IGARASHI, Takao Mitsui-Sumitomo Bank Building 7th Floor 18-19, Nishiki 2-chome Naka-ku, Nagoya-shi Aichi 460-0003 JAPON	
Applicant's or agent's file reference		
PF14F480	IMPORTANT NOTIFICATION	
International application No. PCT/JP00/06683	International filing date (day/month/year) 27 septembre 2000 (27.09.00)	
1. The following indications appeared on record concerning:		
the applicant the inventor	the agent the common representative	
Name and Address	State of Nationality State of Residence	
1) IGARASHI, Takao 2) SHIMOIDE, Takashi Chuo Fushimi Building 3F 3-2, Nishiki 1-chome, Naka-ku Nagoya-shi, Aichi 460-0003	Telephone No.	
Japan	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	
The International Bureau hereby notifies the applicant that to the person		
Name and Address	State of Nationality State of Residence	
 IGARASHI, Takao 2) SHIMOIDE, Takashi Mitsui-Sumitomo Bank Building 7th Floor 	Telephone No.	
18-19, Nishiki 2-chome Naka-ku, Nagoya-shi Aichi 460-0003	Facsimile No.	
Japan	Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary:		
4. A copy of this notification has been sent to:		
X the receiving Office	the designated Offices concerned	
the International Searching Authority	X the elected Offices concerned	
X the International Preliminary Examining Authority	other:	
The International Bureau of WIPO	Authorized officer	
34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Susumu Kubo	
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38	

THIS PAGE BLANK (USPTO)

P INT COOPERATION TREA

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24

Arlington, VA 22202

ETATS-UNIS D'AMERIQUE

Date of mailing (day/month/year) 05 July 2001 (05.07.01)

in its capacity as elected Office

International application No. PCT/JP00/06683 Applicant's or agent's file reference PF14F480

International filing date (day/month/year) 27 September 2000 (27.09.00)

Priority date (day/month/year)
28 September 1999 (28.09.99)

Applicant

NISHII, Mikito et al

1.	The designated Office is hereby notified of its election made:
	X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
	26 February 2001 (26.02.01)
	in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:
2.	The election X was
	was not
	made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

H. Zhou

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Translation

PCT PATENT COOPERATION TREATY

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference PF14F480	FOR FURTHER ACTIO		tionofTransmittalofInternational Preliminary n Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No. PCT/JP00/06683	International filing date (da) 27 September 2000	•	Priority date (day/month/year) 28 September 1999 (28.09.99)
International Patent Classification (IPC) or r C09K 5/10, H01M 8/02, C23F 1			
Applicant TO	YOTÁ JIDOSHA KABU	JSHIKI KAI	SHA
 and is transmitted to the applicant at This REPORT consists of a total of This report is also accompate been amended and are the ba 	3 sheets, inclunied by ANNEXES, i.e., she	ding this cover sets of the describes containing re-	ription, claims and/or drawings which have ctifications made before this Authority (see
	stal of4 sheets.		,
3. This report contains indications relating to the following items: I			
Date of submission of the demand 26 February 2001 (26.0)		of completion of	July 2001 (02.07.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	. Auth	Authorized officer	
Faccimile No.	Telev	shana Na	

THIS PAGE BLANK (USP

I.	Basis	of the re	port	
1.	With	regard to	the elements of the international application:*	
		the inter	national application as originally filed	
	$\overline{\boxtimes}$	the desc	ription:	
	£3	pages	1-21	, as originally filed
		pages		, filed with the demand
		pages	, filed with the letter of	
	\square	the clair	ne:	
		pages		, as originally filed
			11-17 , as amended (together	with any statement under Article 19
				, filed with the demand
		pages	1-10 , filed with the letter of	
		•		
	M	the draw		as anisimally filed
			1-6	, as originally filed
		pages	Cl.d. with the Leave of	
		pages -	, filed with the letter of	
	Lt	he sequer	ice listing part of the description:	
		pages		, as originally filed
		pages		
		pages _	, filed with the letter of	
2.	the ir	nternation	the language, all the elements marked above were available or furnished to thi al application was filed, unless otherwise indicated under this item. s were available or furnished to this Authority in the following language	s Authority in the language in which which is:
		the lang	uage of a translation furnished for the purposes of international search (under Ru	ıle 23.1(b)).
		the lang	uage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).	
		the lang	guage of the translation furnished for the purposes of international preliminary	examination (under Rule 55.2 and/
3.			to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the internati amination was carried out on the basis of the sequence listing:	ional application, the international
		containe	ed in the international application in written form.	
		filed tog	gether with the international application in computer readable form.	
		furnishe	d subsequently to this Authority in written form.	
		furnishe	d subsequently to this Authority in computer readable form.	
			tement that the subsequently furnished written sequence listing does not ional application as filed has been furnished.	go beyond the disclosure in the
		The sta	tement that the information recorded in computer readable form is identical mished.	to the written sequence listing has
4.		The amo	endments have resulted in the cancellation of:	
		<u></u>	he description, pages	
		<u> </u>	he claims, Nos.	,
		L t	he drawings, sheets/fig	
5.			ort has been established as if (some of) the amendments had not been made, sinch disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**	nce they have been considered to go
*	in the		heets which have been furnished to the receiving Office in response to an invita as "originally filed" and are not annexed to this report since they do no	
**		•	nt sheet containing such amendments must be referred to under item I and anne.	xed to this report.
		F.2250		•

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Statement					
Novelty (N)	Claims	1-17	YE		
	Claims		NO		
Inventive step (IS)	Claims	1-17	YE		
	Claims		NO		
Industrial applicability (IA)	Claims	1-17	YE		
	Claims		NO		

2. Citations and explanations

None of the documents cited in the ISR describes "a coolant for fuel cells including a specific rust preventative" and "a coolant cleaning method wherein a cooling agent containing a specific rust preventative is regenerated using an ion exchange resin or a chelate resin," nor are such matters obvious to a party skilled in the art.

Therefore, the inventions relating to claims 1 to 17 appear to possess novelty and involve an inventive step.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2001年4月5日(05.04.2001)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 01/23495 A1

(51) 国際特許分類7: C09K 5/10, H01M 8/02, C23F 11/10

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/06683

(22) 国際出願日:

2000年9月27日 (27.09.2000)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願平11/273813

1999年9月28日(28.09.1999) JP JP

特願2000/176464

2000年6月13日(13.06.2000)

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): トヨ タ自動車株式会社 (TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒471-8571 愛知県豊田市トヨタ町 1番地 Aichi (JP).

Masamine) [JP/JP]; 〒471-8571 愛知県豊田市トヨ タ町1番地トヨタ自動車株式会社内 Aichi (JP). 渡辺久記 (WATANABE, Hisanori) [JP/JP]. 黒川 佳久 (KUROKAWA, Yoshihisa) [JP/JP]. 杉山 (SUGIYAMA, Satoshi) [JP/JP]. 八重田一人 (YAEDA, Kazuhito) [JP/JP]; 〒424-8558 静岡県清水市吉川813

(74) 代理人: 五十嵐孝雄、外(IGARASHI, Takao et al.): 〒 460-0003 愛知県名古屋市中区錦一丁目3番2号 中央 伏見ビル3階 Aichi (JP).

番地 日本ケミカル工業株式会社内 Shizuoka (JP).

(81) 指定国 (国内): CA, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:

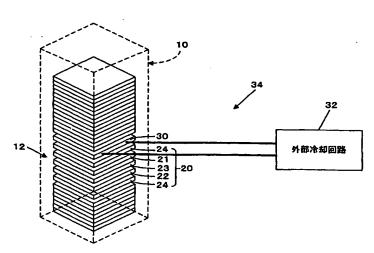
国際調査報告書

(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 西井幹人 (NISHII, Mikito) [JP/JP]. 谷川正峰 (TANIKAWA,

2文字コード及び他の略語については、 定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: COOLANT, METHOD OF ENCAPSULATING COOLANT, AND COOLING SYSTEM

(54) 発明の名称: 冷却液、冷却液の封入方法および冷却システム



32... EXTERNAL COOLING CIRCUIT

(57) Abstract: A coolant for cooling a stack of fuel cells which comprises a base comprising a mixture of water and a glycol and a rust preventive which keeps the conductivity of the coolant low and keeps the hydrogen ion exponent of the coolant at approximately 7. The rust preventive can contain at least either of an alkaline additive based on at least one ethanolamine compound selected among triethanolamine, diethanolamine, and monoethanolamine and an acidic additive selected from the group consisting of triazole compounds, phosphoric acid compounds, and organic phosphoric acid compounds.



(57) 要約:

燃料電池スタック冷却用の冷却液は、水とグリコール類の混合溶液からなる基剤と、冷却液の導電率を低導電率にて維持すると共に冷却液の水素イオン指数をほぼ中性に維持する防錆添加剤とを含有する。この防錆添加剤には、トリエタノールアミン、ジエタノールアミン、およびモノエタノールアミンを含むエタノールアミン系のアルカリ性添加剤およびトリアゾール類、リン酸類および有機リン酸類から構成される群から選択される酸性添加剤の少なくとも一方が含まれ得る。

明細書

冷却液、冷却液の封入方法および冷却システム

技術分野

5 本発明は、冷却液、冷却液の封入方法および冷却液を用いた冷却液システムに 関する。より詳細には、燃料電池を冷却するための冷却液、燃料電池冷却システムの冷却回路に冷却液を封入する方法および燃料電池の冷却システムに関する。

背景技術

25

一般的に、燃料電池のスタックは複数の単電池の積層構造体であり、数層の単 10 電池から構成されるサブスタック毎にスタック(単電池)を冷却するための冷却 板が介装されている。冷却板内部には冷却液通路が形成されており、その冷却液 通路を冷却液が流れることによってスタックが冷却される。このように、燃料電 池の冷却液は、発電を実行しているスタック内、すなわちサブスタック間を循環 するため、スタック外部への漏電および冷却液の抵抗に起因する発電効率の低下 15 (エネルギロスの軽減)を防止するために高い絶縁性能が要求される。これら絶 縁性能の確保、冷却効率の確保等の要求を満たすため、従来技術では純水が冷却 液として用いられてきた。これら要求の他に、燃料電池スタック用冷却液には、 冷却板の製品寿命を長く維持するために防錆性も要求される。この要求に対して は、一般的に、冷却板に防錆性の高いステンレス材料を用いたり、特開平2-2 20 1572号公報に開示されているように冷却液中に鉄イオンを添加することによ って対処されてきた。

しかしながら、このような従来の対処方法は、いわゆる固定式、設置型の中・ 大型燃料電池、常時作動型の燃料電池に対しては効果を奏し得るが、例えば、車 両に搭載される燃料電池といった非設置型の小型の燃料電池、間欠作動型の燃料 5

10

電池に対しては必ずしも有効であるとはいえなかった。

例えば、間欠運転型、非設置型の燃料電池の場合、冷却液は非動作時に周囲温度にまで低下するため、周囲温度が氷点下以下となる条件下では不凍性を備えることが要求される。冷却液が凍結した場合には、冷却板等を含む冷却回路が損傷を受けることがあるからである。また、冷却回路が損傷を受けた場合には、燃料電池がその機能を十分に発揮しないおそれがある。

ここで、不凍性を考慮した場合、例えば、冷却液として、内燃機関冷却用の冷却液を不凍性冷却液として使用することが考えられ得る。ところが、内燃機関冷却用の冷却液は本質的に電気の発生しない部分において用いられるため、低導電性が考慮されておらず、極めて高い電気導電率を有している。一方、燃料電池スタックの冷却管には電気が流れているため、冷却液の電気伝導率が高いと燃料電池で生じた電気が冷却液へと流れ、電気を損出する。したがって、燃料電池スタックを冷却する冷却液としては不適当である。

また、車両搭載用等の非設置型の燃料電池の場合には、冷却回路を含む燃料電池システムの軽量化は重要な克服課題である。したがって、軽量化の観点から、今後は冷却板、熱交換器等に、例えば、アルミニウム材料をはじめとする熱伝導性の高い軽金属が用いられることが予想される。これら軽金属は、一般的に、ステンレス材料ほど高い防錆性を有しおらず、したがって、冷却液自身が防錆性を有することが要求される。

20 本発明は、上記問題を解決するためになされたものであり、燃料電池スタック 用の冷却液として低導電性、防錆性、高熱伝達性および不凍性を備える燃料電池 の冷却液を提供することを目的とする。

発明の開示

25 上記課題を解決するために本発明の第1の態様は、水を含む基剤と、前記冷却

液の導電率を低導電率にて維持すると共に前記冷却液の水素イオン指数をほぼ中性に維持する防錆添加剤とを含む冷却液を提供する。

本発明の第1の態様によれば、低導電性、防錆性、高熱伝達性および不凍性を 満たす冷却液を実現することができる。

5

10

15

20

本発明の第1の態様に係る冷却液において、前記基剤は、さらにグリコール類を含む混合溶液であってもよい。記防錆添加剤は、弱アルカリ性添加剤および弱酸性添加剤のうち少なくとも一方を含んでも良く、あるいは、アルカリ性添加剤と酸性添加剤とを含むことができる。さらに、前記アルカリ性添加剤はエタノールアミン系の物質であっても良い。また、前記エタノールアミン系物質は、トリエタノールアミン、ジエタノールアミン、およびモノエタノールアミンを含むことができる。

本発明の第1の態様に係る冷却液において、前記酸性添加剤はトリアゾール類、リン酸類および有機リン酸類から構成される群から選択されることができる。また、前記防錆添加剤は前記冷却液を水素イオン指数約6~約9の範囲に維持するものであっても良い。さらに、前記防錆添加剤は前記冷却液を約100 μ S/c m未満の低導電率に維持するものであっても良い。またさらに、前記防錆添加剤は特にアルミニウム材料に対して防錆性を有することができる。

本発明の第1の態様に係る冷却液において、前記防錆添加剤は、ノニオン系物質であっても良く、前記ノニオン系物質は、糖類および非イオン界面活性剤の少なくとも一方を含んでもよい。また、前記冷却液は、イオン交換樹脂およびキレート樹脂を用いた冷却液精製システムによって再生されても良く、さらに脱酸素処理が施されていても良い。防錆添加剤としてノニオン系物質を用いる場合には、冷却液中で防錆添加剤がイオン化せず、イオン交換樹脂およびキレート樹脂を用いることによりイオン化している不純物のみを容易に取り除くことができる。

25 また、脱酸素処理により冷却液の品質の劣化を長期にわたり防止することができ

る。

5

10

15

本発明の第2の態様は、本発明の第1の態様に係る冷却液を燃料電池のスタック冷却回路に封入するための方法を提供する。この方法は、前記冷却液に対して脱酸素処理を施し、脱酸素処理された前記冷却液を不活性ガスと共に前記冷却回路に封入することを特徴とする。

本発明の第2の態様によれば、冷却回路中の冷却液の品質の劣化を長期にわたり防止することができる。

本発明の第3の態様は、燃料電池のスタック冷却システムを提供する。この冷却システムは、本発明の第1の態様に係る冷却液と、その冷却液と不活性ガスとが封入されている冷却回路とを備えることを特徴とする。

本発明の第3の態様によれば、冷却システムは、低導電性、防錆性、高熱伝達性および不凍性を有することができる。また、冷却回路中の冷却液の品質の劣化を長期にわたり防止することができる。

本発明の第4の態様は、冷却液の浄化方法を提供する。本発明の第4の態様に係る冷却液の浄化方法は、水を含む基剤を調整し、前記冷却液の導電率を低導電率にて維持すると共に前記冷却液の水素イオン指数をほぼ中性に維持する防錆添加剤を調整し、イオン交換樹脂またはキレート樹脂を用いて前記基剤と前記防錆添加剤を混合した冷却液の劣化物のみを定期的に除去することを特徴とする。

本発明の第4の態様に係る冷却液の浄化方法によれば、低導電性、防錆性、高 20 熱伝達性および不凍性を満たす冷却液の品質劣化を長期にわたり防止することが できる。なお、基剤の調整に際しては、水に加えてグリコール類を用いても良い 。また、防錆添加剤の調整に際しては、ノニオン系物質を用いて調整してもよい

25 図面の簡単な説明

図1は本発明に従う第1実施例〜第9実施例において用いた冷却液の組成並びに水素イオン指数(pH)、および比較例1〜比較例6の冷却液の組成並びにpHを示す表である。

図2は、図1に列挙した第1実施例~第9実施例、並びに比較例1~比較例6 5 に対する各種試験結果を示す表である。

図3は、エチレングリコール50%希釈液にクエルセチンを添加した場合の導 電率の推移を示すグラフである。

図4は、第2の発明の実施の形態が適用され得る燃料電池スタック冷却システムの構成図である。

10 図5は、単電池20の積層構造を示す分解斜視図である。

図6は、第3の発明の実施の形態に従う、第1の発明の実施の態様に係る冷却 液を製造する工程の概略を示す説明図である。

発明を実施するための最良の形態

15 ・第1の発明の実施の形態:

20

以下、本発明に係る冷却液について図1および図2を参照して説明する。

先ず、図1を参照して各冷却液の特性について説明する。図1は本発明に従う 第1実施例~第9実施例において用いた冷却液の組成並びに水素イオン指数(p H)、および比較例1~比較例6の冷却液の組成並びにpHを示す表である。図2 は図1に示した第1実施例~第9実施例において用いた冷却液および比較例1~ 比較例6の冷却液の比較試験結果を示す表である。なお、図1中においては、第 1実施例~第9実施例を実施例1~実施例9として示す。

第1実施例の冷却液は、基剤としてエチレングリコール (50重量%) および イオン交換水 (48.9重量%) を含み、防錆添加剤としてトリエタノールアミ 25 ン (1.0重量%) およびオルト燐酸 (0.1重量%) を含む。エチレングリコ

ールはプロピレングリコールと共にグリコール類に属すると共に、混合対象の溶液に不凍性特性をもたらす物質として周知である。また、イオン交換水とグリコール類の混合溶液である基剤は、車両の内燃機関用冷却液として一般的に用いられていることからも理解されるように、熱伝導特性に優れている。

5 ここで、トリエタノールアミンはエタノールアミン系のアルカリ性防錆添加剤であり、オルト燐酸は燐酸類に属する酸性防錆酸化剤である。この第1実施例の冷却液はpH8.1である。なお、防錆性能確保および導電率抑制の観点からトリエタノールアミンは0.1~3.0重量%の範囲で添加可能であり、オルト燐酸は0.1~1.0重量%の範囲で添加可能である。かかる場合、イオン交換水の重量%を調整することで全体の組成が100重量%に調整される。また、トリエタノールアミンに代えてモノエタノールアミン、ジエタノールアミンといった他のエタノールアミン系物質を用いても良く、オルト燐酸に代えて他の燐酸類物質を用いても良い。

第2実施例の冷却液は、基剤としてエチレングリコール(50重量%)および 15 イオン交換水(49.655重量%)を含み、防錆添加剤としてトリエタノール アミン(0.34重量%)およびホスホン酸(0.005重量%)を含む。ホス ホン酸は有機燐酸類に属する酸性防錆酸化剤である。この第2実施例の冷却液は pH8.1である。なお、防錆性能確保および導電率抑制の観点からトリエタノ ールアミンは0.1~3.0重量%の範囲で添加可能であり、ホスホン酸は0.

20 001~0.01重量%の範囲で添加可能である。かかる場合、イオン交換水の 重量%を調整することで全体の組成が100重量%に調整される。また、トリエ タノールアミンに代えてモノエタノールアミン、ジエタノールアミンといった他 のエタノールアミン系物質を用いても良く、ホスホン酸に代えて他の有機燐酸類 物質を用いても良い。

25 第3実施例の冷却液は、基剤としてエチレングリコール(50重量%)および

イオン交換水 (49. 「重量%)を含み、防錆添加剤としてベンゾトリアゾール (0.1重量%)を含む。ベンゾトリアゾールはトリアゾール類に属する酸性防 錆酸化剤である。この第3実施例の冷却液はpH6.2である。なお、防錆性能 確保および導電率抑制の観点からベンゾトリアゾールは0.1~0.6重量%の 範囲で添加可能である。かかる場合、イオン交換水の重量%を調整することで全体の組成が100重量%に調整される。また、ベンゾトリアゾールに代えて他のトリアゾール類を用いても良い。

5

10

15

20

以下の第4実施例〜第9実施例の冷却液は、防錆添加剤として水溶液中にてイオン化しないノニオン系物質を用いた点に特徴を有する。ノニオン系物質には、糖類、非イオン系界面活性剤等が含まれる。

第4実施例の冷却液は、基剤としてエチレングリコール(50重量%)およびイオン交換水(49.95重量%)を含み、防錆添加剤としてノニオン系物質であり配糖類の一種であるクエルセチン(3,3',4',5,7-pentahydroxyflavone)(0.05重量%)を含む。この第4実施例の冷却液はpH7~8である。なお、防錆性能確保および導電率抑制の観点からクエルセチンは0.005~0.2重量%の範囲で添加可能である。かかる場合、イオン交換水の重量%を調整することで全体の組成が100重量%に調整される。

第5実施例の冷却液は、基剤としてエチレングリコール(50重量%)およびイオン交換水(49.90重量%)を含み、防錆添加剤として単糖類の一種であるグルコース(0.10重量%)を含む。この第5実施例の冷却液はpH7~8である。なお、防錆性能確保および導電率抑制の観点からグルコースは0.05~0.5重量%の範囲で添加可能である。かかる場合、イオン交換水の重量%を調整することで全体の組成が100重量%に調整される。

第6実施例の冷却液は、基剤としてエチレングリコール(50重量%) および 25 イオン交換水(49.90重量%)を含み、防錆添加剤として少糖類の一種であ

るマルトース (0. 10重量%) を含む。この第6実施例の冷却液は $pH7\sim8$ である。

第7実施例の冷却液は、基剤としてエチレングリコール(50重量%)およびイオン交換水(49.50重量%)を含み、防錆添加剤として少糖類の一種であるマルトース(0.50重量%)を含む。この第7実施例の冷却液はpH7~8である。

5

10

15

20

25

第8実施例の冷却液は、基剤としてエチレングリコール(50重量%)およびイオン交換水(49.90重量%)を含み、防錆添加剤として非イオン系界面活性剤の一種であるアルキルグルコシド(0.10重量%)を含む。この第8実施例の冷却液はpH7~8である。なお、防錆性能確保および導電率抑制の観点からアルキルグルコシドは0.05~0.5重量%の範囲で添加可能である。かかる場合、イオン交換水の重量%を調整することで全体の組成が100重量%に調整される。

第9実施例の冷却液は、基剤としてエチレングリコール(50重量%)およびイオン交換水(49.90重量%)を含み、防錆添加剤として非イオン系界面活性剤の一種であるポリオキシエチレン(POE)ソルビタンモノパルミテート(0.10重量%)を含む。この第9実施例の冷却液はpH7~8である。なお、防錆性能確保および導電率抑制の観点からPOEソルビタンモノパルミテートは0.05~0.5重量%の範囲で添加可能である。かかる場合、イオン交換水の重量%を調整することで全体の組成が100重量%に調整される。

なお、本発明の実施の形態では、燃料電池が車両に搭載される際には、冷却板並びに冷却回路中の熱交換器等の材質として、アルミニウムおよびアルミニウム合金が用いられることを考慮し、特にアルミニウム材料に対する防食性等を考慮した。燃料電池を車載する際には、軽量化、低コスト化等が要求されることとなり、これら要求に応え得る材料として現在でも車両用ラジエタ等に多用されてい

5

10

15

るアルミニウム材料が適当と考えられるからである。

したがって、第1実施例~第9実施例において用いられる各防錆添加剤は、あくまで、例示であり、この他にもアルミニウム材料に対して良好な防錆性を示す 防錆剤が用いられ得る。あるいは、アルミニウム材料以外の材料が用いられる際 には、用いられる材料に対して防錆性を備える防錆添加剤を用いればよい

比較例1の冷却液は、一般的に自動車の内燃機関冷却用に用いられる冷却液であり、基剤としてエチレングリコール(50重量%)およびイオン交換水(46.78重量%)を含み、防錆添加剤としてオルト燐酸(0.2重量%)、ベンゾトリアゾール(0.1重量%)、硝酸ナトリウム(0.1重量%)、モリブデン酸ナトリウム(0.2重量%)、安息香酸ナトリウム(2.5重量%)および水酸化ナトリウム(0.12重量%)を含む。比較例1の冷却液のpHは7.3である。

比較例2の冷却液は、エチレングリコール(50重量%)およびイオン交換水 (50重量%)を含む冷却液であり、防錆添加剤を含まない場合におけるエチレングリコールーイオン交換水系の特性を検討するために用いた。この冷却水はp H 6.8である。

比較例3の冷却液は、プロピレングリコール(50重量%)およびイオン交換水(50重量%)を含む冷却液であり、防錆添加剤を含まない場合におけるプロピレングリコールーイオン交換水系の特性を検討するために用いた。この冷却水はpH6.8である。

20 比較例4の冷却液は、グリセリン(50重量%)およびイオン交換水(50重量%)を含む冷却液であり、比較参照のために用いた。

比較例5は一般の水道水(100重量%)であり、水道水の特性を検討するために用いた。

比較例6は、従来より、燃料電池冷却用冷却液として用いられているイオン交25 換水(100重量%)であり、比較参照のために用いた。

上記各実施例および比較例におけるpH調整にあたっては、従来のようにpH 調整剤(例えば、水酸化カリウム等)を用いることなく、防錆添加剤の添加量を 調整することによってpH6~9の範囲に収まるように調整した。なお、pH測 定は市販のpH計測器を用いて25℃で実施した。

5 次に、図2を参照して各種比較試験の結果を説明、検討する。図2は図1に列 挙した第1実施例~第9実施例、並びに比較例1~比較例6に対する各種試験結 果を示す表である。

先ず、導電率(電気伝導度)(μ S / c m)の試験結果について比較する。この 導電率試験は、試験対象の冷却液中に 2 本の電極を投入し、これら電極間におけ る電流の流れ易さを計測する試験であり、その方法は当業者にとって周知である 。なお、本発明の実施の形態においては、市販の導電率計用いて 25 での条件下 で測定した。なお、図 2 中においては、第 1 実施例~第 9 実施例を実施例 1 ~実 施例 9 として示す。

10

25

先ず、従来より自動車の内燃機関冷却用に用いられてきた冷却液である比較例 1について検討すると、導電率は5960(μS/cm)であり、他の各実施例 および比較例と比較して極めて高い導電率を示した。これは、比較例1が添加物 として水酸化ナトリウム、硝酸ナトリウムといった微量でも高い導電率をもたら す強電解質物質を含んでいることが原因と考えられる。この他に、従来より防錆剤として広く用いられてきた物質には、硝酸ナトリウム、モリブデン酸ナトリウム、安息香酸ナトリウム等があり、また、溶液の中和剤として用いられてきた物質には水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等がある。

また、比較例5もその性質上、種々のイオンを含有しており、286 (μ S/cm) という高い導電率を示した。これに対して、比較例4はイオンをほとんど有しないので1. 8 (μ S/cm) という比較的低い導電率を示した。また、従来より燃料電池用冷却液として用いられてきたイオン交換水(比較例6) は、イ

オンをほとんど含有しないので、 $0.88(\mu S/cm)$ という最も低い導電率を示した。

第2実施例の導電率は5.01 (μ S/cm)であり、この導電率は、第2実施例の冷却液の基剤である比較例2の導電率3.46 (μ S/cm)と近似する値を、また同じグリコール類に属するプロピレングリコールを含有する比較例3の導電率1.63 (μ S/cm) に近い値を示した。

5

10

15

また、第3実施例の導電率は2. 11 (μ S/cm)であり、この導電率は、第3実施例の冷却液の基剤である比較例2の導電率3. 46 (μ S/cm)および同じグリコール類に属するプロピレングリコールを含有する比較例3の導電率1. 63 (μ S/cm)とほぼ同一の値を示した。

溶液中のイオン濃度を増大させる電解質物質である添加剤の添加は、通常、導電率を増大させる傾向にある。しかしながら、第2実施例および第3実施例における冷却液においては、添加剤の添加による導電率変化は無視できる。

第4実施例および第7実施例の導電率はそれぞれ5.3 (μ S/cm) および5.0 (μ S/cm) であり、この導電率は、第4実施例および第7実施例の冷却液の基剤である比較例2の導電率3.46 (μ S/cm) と近似する値を示した。

第5実施例、第6実施例、第8実施例および第9実施例の導電率は、それぞれ、3.6 (μS/cm)、3.5 (μS/cm) 3.2 (μS/cm) 4.4 (μ 20 S/cm) であり、この導電率は、第5、第6、第8および第9実施例の冷却液の基剤である比較例2の導電率3.46 (μS/cm) とほぼ同一の値を示した

第4実施例〜第9実施例に用いた防錆添加剤は、溶液中にてイオン化しないノニオン系の物質であるため、理論的には溶媒の有する導電率と同一の値を取ることが予想される。実験結果としての第4実施例〜第9実施例では、いずれの実施

例においても、溶媒が有する導電率とほぼ同一、あるいは、極めて近似する値を 示すことが確認された。したがって、第4実施例~第9実施例における冷却液に おいては、添加剤の添加による導電率変化は無視できる。

ここで、第4実施例において防錆添加剤として用いたクエルセチンについてその添加量と導電率との関係を図3を参照して説明する。図3はエチレングリコール50%希釈液にクエルセチンを添加した場合の導電率の推移を示すグラフであり、横軸はクエルセチン添加量(ppm)を縦軸は導電率(μS/cm)を示す。図3から理解されるように、クエルセチン添加量が700ppmまでは導電率は約5~6(μS/cm)であり、添加量によらず溶媒(例えば、比較例2)が示す 導電率3.5(μS/cm)と近似した導電率を示している。また、クエルセチン添加量が700ppmを超えた後も、導電率は増加するものの、その値は、例えば、クエルセチン添加量1000ppmにおいて約7(μS/cm)である。したがって、ノニオン系物質であるクエルセチンは、その添加量によらず低い導電率を示すことが理解され、低い導電率が要求される冷却液にとって良好な防錆添加 剤であるということができる。

第1実施例の導電率は29.0 (μ S/cm) であり、比較例2および比較例3の導電率 (5.01 (μ S/cm)、3.46 (μ S/cm))と比較すると高いが、その値は比較例5の1/10であり、さらに比較例1の1/100以下である。

20 このように、第1実施例〜第3実施例に係る冷却液のpH調整は、防錆添加剤の有する酸性、アルカリ性の特性を利用して調整されるので、pH調整剤を用いる場合と比較して、冷却液の導電率は極めて低い値に維持される。また、第4実施例〜第9実施例に係る冷却水の防錆添加剤は中性であるとともにノニオン系物質であるため、pH調整することなく冷却液の導電率を溶媒の導電率とほぼ同ーの値に維持することができる。

次に試験対象金属が不動態化される電流である不動態化電流密度(不動態化保持電流)(μ A / c m 2)について比較する。この試験では、試験試料であるアルミニウム材料(A C 2 A)を一方の電極に用い、白金電極を他方の電極に用い、両電極を図1に示す各冷却液(88℃、300ml)中に浸し、N $_2$ 10ml / minでパブリングを行い、冷却液に脱酸素処理を施した状態で両電極間を流れる電流を計測した。電流密度は、試験材料が電気分解する際に単位面積当たりに発生する電流の大きさを示しており、一般的に、電流密度が高いほど、試験材料が溶けだし易い、すなわち腐食され易いことを意味する。したがって、本試験では、電流密度が高いほどアルミニウム材料の腐食速度が高いことを意味する。

5

20

10 なお、図 2 中にて測定値をかっこで括る第 4 実施例〜第 9 実施例、および比較 例 2 〜比較例 4 については測定の際、指示電解質として HCO_3 を 5 0 ppm添加 して測定を実行した。指示電解質として HCO_3 を 5 0 ppm添加したものでは、 HCO_3 (イオン) が溶存しているため、電流密度の値が高くなっている。

また、第1実施例〜第3実施例、比較例1〜比較例3、および比較例5につい 15 ては、Air通気下での実験も実施した。

第1実施例は N_2 通気下で4. 8 (μ A/c m^2)、A i r 通気下で2. 4 (μ A/c m^2)、第2実施例は N_2 通気下で1 (μ A/c m^2)、A i r 通気下で1 2 (μ A/c m^2)、第3実施例は N_2 通気下で2. 4 (μ A/c m^2)、A i r 通気下で2. 4 (μ A/c m^2) の不動態化電流密度をそれぞれ示した。また、第4実施例は7 (μ A/c m^2)、第5実施例は15 (μ A/c m^2)、第6実施例は16 (μ A/c m^2) の不動態化電流密度をそれぞれ示した。さらに、第7実施例は16 (μ A/c m^2) の不動態化電流密度をそれぞれ示した。さらに、第7実施例は16 (μ A/c m^2)、第8実施例は16 (μ A/c m^2)、第9実施例は16 (μ A/c m^2) の不動態化電流密度を示した。

これに対して、比較例1はN₂通気下で3.0 (μA/cm²)、Air通気下 25 で3.0 (μA/cm²)、比較例2はN₂通気下で100 (μA/cm²)、Ai

r 通気下で2.0 (μ A/cm 2)、比較例3は N_2 通気下で100 (μ A/cm 2)、Air通気下で1.3 (μ A/cm 2)の不動態化電流密度をそれぞれ示した。また、比較例4は100 (μ A/cm 2)、比較例5は N_2 通気下で76 (μ A/cm 2)、Air通気下で210 (μ A/cm 2)の不動態化電流密度をそれぞれ示した。

5

10

15

20

25

したがって、第1実施例〜第7実施例に係る冷却液は、比較例2ないし比較例5の冷却液と比較してアルミニウム材料が腐食しにくい冷却液であるといえる。特に、第4実施例〜第7実施例に係る冷却液には指示電解質が含まれているにも拘わらず極めて低い不動態化電流密度を示し、本来的にアルミニウム材料を腐食しにくい冷却液であることが理解される。

また、第8実施例および第9実施例に係る冷却液は、第1実施例~第7実施例に係る冷却液と比較すれば高めの値を取るが、比較例2ないし比較例4と比較すればアルミニウム材料が腐食しにくい冷却液であるといえる。なお、指示電解質を含まない比較例1の冷却液は、同様に指示電解質を含まない第1実施例~第3実施例に係る冷却液とほぼ同等の低い不動態化電流密度を示すが、その導電率が極めて高いので冷却液として適当でないのは既述の通りである。さらに、比較例5の冷却液に至っては、第1実施例~第3実施例に係る冷却液と比較して不動態化電流密度も高く、その導電率も高いので冷却液として適当でない。

最後に、金属防食性試験、ここでは冷却液中におけるアルミニウム材料の腐食減量(単位面積当たりの質量減:mg/cm²)を測定する試験について検討する。この試験は、88℃に加熱された各冷却溶液中にアルミニウム材料を空気通気の下、360時間放置することにより行われた。また、この試験は第1実施例~第7実施例、および比較例1~比較例3、比較例5、比較例6についてはAir通気の下2回実施し、第1実施例、第3実施例、および比較例3についてはN2通気の下2回実施した。表中の金属防食試験の負の値はアルミニウム材料が腐

食されたことを意味し、他はアルミニウム材料が腐食されず、その表面に何らかの物質が付着したことを意味する。

最も腐食が懸念される比較例 5 は、1回目、-0.52 (mg/cm²)、2回目、-0.43 (mg/cm²) の腐食量を示した。また、各実施例の基剤である比較例 2 は、1回目、-0.12 (mg/cm²)、2回目、0.10 (mg/cm²) の腐食量を示し、グリコール類に含まれるプロピレングリコールを含む比較例 3 は、1回目、-0.12 (mg/cm²)、2回目、0.09 (mg/cm²) の腐食量を示した。

5

これに対して、第1実施例は、1回目、0.01 (mg/cm²)、2回目、10 0.01 (mg/cm²) の腐食量を示し、第2実施例は、1回目、2回目共に
-0.04の腐食量を示し、第3実施例は、1回目、0.04 (mg/cm²)、
2回目、0.15 (mg/cm²) の腐食量を示した。第4実施例は、1回目、
-0.02 (mg/cm²)、2回目、0.01 (mg/cm²) の腐食量を示し、第5実施例は、1回目、2回目共に-0.02 (mg/cm²) の腐食量を示し、第5実施例は、1回目、2回目共に-0.02 (mg/cm²)、2回目、-0.01 (mg/cm²)の腐食量を示し、第6実施例は、1回目、-0.03 (mg/cm²)、2回目、-0.01 (mg/cm²)の腐食量を示し、第7実施例は、1回目、0.00 (mg/cm²)、2回目、-0.02 (mg/cm²)の腐食量を示した。

したがって、第1~第7実施例のいずれの実施例においても、比較例4が示した数値を大きく下回ると共に、その基剤である比較例2との対比においても防食 20 性を向上させていることが分かる。

なお、比較例 6 は、1 回目、2 回目共に0. 1 0 (mg/cm^2) の腐食量を示し、比較例 1 は、1 回目、- 0 . 0 2 (mg/cm^2) 、2 回目、0 . 0 3 (mg/cm^2) の腐食量を示した。

これら比較例と比較しても、各実施例はほぼ同等の腐食量、あるいは、より少 25 ない腐食量を示している。

次に、第1実施例、第3実施例、および比較例3に係る冷却液に対する N_2 通気の下での腐食量について検討する。第1実施例は、1回目、0.00 (mg/cm^2) 、2回目、-0.01 (mg/cm^2) の腐食量を示し、第3実施例は、1回目、0.04 (mg/cm^2) 、2回目、0.05 (mg/cm^2) の腐食量を示し、比較例3は、1回目、0.02 (mg/cm^2) 、2回目、0.04 (mg/cm^2) の腐食量を示し、比較例3は、1回目、0.02 (mg/cm^2) 、2回目、0.04 (mg/cm^2) の腐食量を示した。

5

これら各腐食量をAir通気の場合と比較すると、第1実施例については同様の結果が得られ、第3実施例についてはほぼ同様の結果が得られた。これに対して、比較例3では、 N_2 通気により腐食が防止された結果が得られた。すなわちい。 室素 (N_2) 等の不活性ガスを吹き込む脱酸素処理を実施することによって、冷却液中の溶存酸素が減少し、アルミニウム材料の腐食を抑制できることが示された。したがって、窒素ガス等を用いて冷却液を脱酸素処理することにより、冷却液回路を形成する材料として用いられるアルミニウム材料の腐食を防止することができる。

以上の比較試験結果を振り返ると、比較例6の冷却液、すなわち、これまで用いられてきたイオン交換水(純水)は、導電率、腐食減量の各試験結果において、良好な数値を示している。しかしながら、イオン交換水は、氷点下以下の環境下において凍結してしまう。そのため、冷却液としてイオン交換水を用いた場合、氷点下以下の環境下に置かれる可能性のある燃料電池では、凍結防止回路を儲
 け、凍結防止回路を常時運転しなければならない。しかしながら、非設置型、間欠作動型の燃料電池に対して凍結防止回路を設けることは困難である。したがて、氷点下以下の環境下に置かれる可能性のある非設置型、間欠作動型の燃料電池にイオン交換水を用いるのは不適当である。

また、比較例1の冷却液、すなわち、従来の内燃機関冷却用の冷却液は、不凍 25 性、防錆性等に関しては良好な結果を示すものの、その導電率は極めて高く、低

導電率性能が要求される燃料電池スタック冷却用の冷却液には不向きである。

さらに、比較例2および比較例3の冷却液、すなわち、第1実施例~第3実施例の基剤、およびその基剤と同等な基剤を全成分とする冷却液は、導電率、不凍性については良好な結果を示すものの、防食性(防錆性)の観点からは、燃料電池スタック冷却用の冷却液として不向きである。

したがって、第1実施例〜第9実施例の冷却液の組成は、不凍性、防錆性、導電率、熱伝導率の観点から、燃料電池スタック用の冷却液として好適であることが分かる。

上記したpH測定、導電率試験は1 a t m、2 5 Cの条件下で行い、金属防食 10 試験、不動態化電流密度試験は1 a t m、8 8 Cの条件下で行ったが、これら圧 カ下、温度下だけでなく、使用条件、例えば、 $1 \sim 1$. 9 a t m、 $-3 5 C \sim 1$ 0 0 Cにおいて、pHを約 $6 \sim$ 約9、導電率を約 $1 0 0 \mu S$ /c m未満となるように添加剤を調整することが望ましい。

また、第3実施例では弱酸性のベンゾトリアゾールを用いて冷却液を調整した 15 が、弱アルカリ性のエタノールアミン系の添加剤を用いて、所望の防錆性、導電 率、pHに冷却液を調整してもよい。

なお、第1実施例〜第9実施例、および比較例1〜比較例3の凍結温度は氷点 下30℃であり、比較例5および比較例6の凍結温度は0℃であった。

・第2の発明の実施の形態:

5

- 20 第2の発明の実施の形態では、第1の発明の実施の形態の各実施例である冷却 液を冷媒として備える燃料電池のスタック冷却システムについて図4および図5 を参照して説明する。図4は本発明の実施の形態が適用され得る燃料電池スタッ ク冷却システムの構成図である。図5は、単電池20の積層構造を示す分解斜視 図である。
- 25 燃料電池10のスタック12は積層配置された複数の単電池20から構成され

ている。単電池20は空気極21、燃料極22、空気極21および燃料極22に 挟まれたマトリックス(電解質)23、燃料極22および空気極21の外側面に 配置される緻密質カーボン製のセパレータ24を備えている。そして、この単電 池20が数層積み上げられる毎にセパレータ24上にアルミニウム製の冷却セパ レータ30が配置される。

5

10

15

20

25

本実施例において、セパレータ24は、端部セパレータ40、中央セパレータ50のいずれかとして構成されている。冷却セパレータ30およびこれらのセパレータ40、50は、積層面が正方形状である板状に形成されている。冷却セパレータ30、端部セパレータ40および中央セパレータ50には、その周辺部の2カ所(図5中の上部両隅)に、断面が円形の冷却液孔81,82が形成されている。この冷却液孔81,82は、上記スタックを形成した際、スタックを積層方向に貫通する冷却液の流路を形成する。また、上記三種類のセパレータの積層面の各辺の縁付近には、それぞれの辺に沿って、細長い一対の燃料ガス孔83,84および一対の酸化ガス孔85,86が形成されている。この燃料ガス孔83,84および酸化ガス孔85,86は、スタックを形成した際、水素を含有する燃料ガスおよび酸素を含有する酸化ガスの流路を、スタックの積層方向に貫通して形成する。

この冷却セパレータ30は、冷却液通路を介して外部冷却回路32と接続され、冷却セパレータ30を含めて冷却回路34が構成される。冷却セパレータ30の片面(図5中裏面側)には、対向する酸化ガス孔85,86間を連絡する複数の平行な溝状のリブ63が形成されている。リブ63は、スタックを形成した際には隣接する空気極21との間に酸化ガス流路を形成する。また、冷却セパレータ30の他面(図5中正面側)には、既述した冷却液孔81,82間を連絡する葛折状の溝87が形成されている。スタックを形成する際には、冷却セパレータ30は、端部セパレータ40と隣接し、このとき溝87は、端部セパレータ40

のフラットな面との間で冷却液路を形成する。

5

10

15

20

端部セパレータ40の片面(図5中正面側)には、対向する燃料ガス孔83,84間を連絡する複数の平行な溝状のリブ62が形成されている。リブ62は、スタックを形成した際には隣接する燃料極22との間に燃料ガス流路を形成する。端部セパレータ40の他面(図5中裏面側)は、溝構造のないフラットな面となっている。

中央セパレータ50の片面(図5中正面側)には、対向する燃料ガス孔83,84間を連絡する複数の平行な溝状のリブ62が形成されている。リブ62は、スタックを形成した際には隣接する燃料極22との間に燃料ガス流路を形成する。中央セパレータ50の他面(図5中裏面側)には、対向する酸化ガス孔85,86間を連絡し、リブ62と直交する複数の溝状のリブ63が形成されている。リブ63は、スタックを形成した際には、隣接する空気極21との間に酸化ガス流路を形成する。

なお、上記セパレータ24(40、50)は、緻密質カーボンによって形成することとしたが、導電性を有する他の部材によって形成することとしてもよい。 例えば、剛性および伝熱性を重視して、銅合金やアルミニウム合金などの金属で 形成してもよい。

冷却回路内の冷却液には、第1の発明の実施の形態に係る冷却液(すなわち、第1実施例~第9実施例の冷却液)が用いられており、また、これら冷却液を冷却回路34内に封入する際には、不活性ガス、例えば、窒素ガスが共に封入される。したがって、冷却回路34内の空気および冷却液中の溶存酸素は窒素ガスにて置換され、溶存酸素に起因する冷却液の劣化が防止される。このことは、第1の発明の実施の形態における試験結果によって裏付けられる。

第3の発明の実施の形態:

25 第3の発明の実施の態様では、図6を参照して第1の発明の実施の態様に係る

冷却液の製造方法について説明する。図6は第1の発明の実施の態様に係る冷却液を製造する工程の概略を示す説明図である。

先ず、イオン交換水およびエチレングリコールを用いて基剤を調整する。例えば、製造後冷却液においてエチレングリコールが50重量%となるように、防錆添加剤の添加量も考慮して調整する(工程1)。続いて、アルカリ性添加剤と酸性添加剤とを用いて、あるいは、ノニオン系物質を用いて防錆添加剤を調整する(工程2)。防錆添加剤としては第1の発明の実施の形態にて述べた化学物質を用いることができる。例えば、第1実施例の防錆添加剤を調整する場合には、製造後冷却液にてトリエタノールアミンが1.0重量%となり、オルト燐酸が0.1重量%となるように調整される。

5

10

15

20

基剤と防錆添加剤を調整した後、基剤と防錆添加剤とを混合させて混合溶液とする(工程3)。混合に際しては、撹拌を同時に実行しても良い。最後に、イオン交換樹脂膜を用いて混合溶液を濾過(精製)して、混合溶液中のイオン化物質を除去する(工程4)。イオン交換樹脂膜によって精製された混合溶液が第1の発明の実施の形態に係る冷却液となる。

かかる製造方法によれば、不凍性、防錆性、導電率、熱伝導率の観点から、燃料電池スタック用の冷却液として好適な冷却液を製造することができる。

なお、イオン交換樹脂で精製する場合、イオン交換樹脂膜、繊維状のイオン交換樹脂を用いて精製しても良いし、イオン交換樹脂粒子で充填したカラムに被精製液を通して精製しても良い。また、基剤と防錆添加剤との混合液とイオン交換樹脂を所定時間撹拌し、PTFE製の濾過膜によって混合液を精製しても良い。イオン交換樹脂を使用するに当たっては、混合液を精製する前に、酸溶液(例えば、濃塩酸)によって処理し、イオン交換樹脂に吸着されている金属イオンを除去しておくと良い。

25 以上、いくつかの発明の実施の形態に基づき本発明に係る燃料電池冷却液、を

説明してきたが、上記した発明の実施の形態は、本発明の理解を容易にするためのものであり、本発明を限定するものではない。本発明は、その趣旨並びに特許請求の範囲を逸脱することなく、変更、改良され得ると共に、本発明にはその等価物が含まれることはもちろんである。

5 例えば、上記第1の発明の実施の形態の各実施例において用いた各組成成分の 比率は例示であり、例えば、トリエタノールアミンは0.1~3.0重量%の範 囲で、オルト燐酸は0.1~1.0重量%の範囲で、ホスホン酸は0.001~ 0.01重量%の範囲で、ベンゾトリアゾールは0.1~0.6重量%の範囲で それぞれ所望の不凍性、防錆性、導電率、熱伝導率を有し得る。

10 また、pH値についても、各実施例は6.2および8.1の値を取るが、特に アルミニウム材料を冷却回路に用いる場合には、pH6~9の範囲の値を取って もアルミニウム材料は腐食されることはない。

さらに、第2の発明の実施の形態の説明に際して用いた燃料電池スタック冷却 システムの構成図は例示であり、不活性ガスと共に封入される第1の発明の実施 の形態に係る冷却液を冷却回路の冷媒として備える冷却システムであればこれに 限られない。

15

20

また、上記各発明の実施の形態においては、特に、冷却板を含む冷却回路にアルミニウム材料が用いられることを想定して各防錆添加剤、冷却液のpHを決定した。しかしながら、冷却回路に他の材料が用いられることを妨げるものでなく、他の材料が用いられる場合には、用いられる材料に適当な防錆添加剤を用い、要求されるpHを実現すればよい。

請求の範囲

1. 冷却液であって、

水を含む基剤と、

前記冷却液の導電率を低導電率にて維持すると共に前記冷却液の水素イオン指 5 数をほぼ中性に維持する防錆添加剤とを含む冷却液。

2. 請求の範囲第1項に記載の冷却液において、

前記基剤はさらに、グリコール類を含む混合溶液であることを特徴とする冷却 液。

10

3. 請求の範囲第1項または第2項に記載の冷却液において、

前記防錆添加剤は、弱アルカリ性添加剤および弱酸性添加剤のうち少なくとも一方を含むことを特徴とする冷却液。

15 4. 請求の範囲第1項または第2項に記載の冷却液において、

前記防錆添加剤は、アルカリ性添加剤と酸性添加剤とを含むことを特徴とする冷却液。

- 5. 請求の範囲第4項に記載の冷却液において、
- 20 前記アルカリ性添加剤はエタノールアミン系の物質であることを特徴とする冷却液。
 - 6. 請求の範囲第5項に記載の冷却液において、

前記エタノールアミン系物質は、トリエタノールアミン、ジエタノールアミン 25 、およびモノエタノールアミンを含むことを特徴とする冷却液。 7. 請求の範囲第4項ないし第6項のいずれかに記載の冷却液において、前記酸性添加剤はトリアゾール類、リン酸類および有機リン酸類から構成され

る群から選択されることを特徴とする冷却液。

5

- 8. 請求の範囲第1項ないし第7項のいずれかに記載の冷却液において、 前記防錆添加剤は前記冷却液を水素イオン指数約6~約9の範囲に維持することを特徴とする冷却液。
- 10 9. 請求の範囲第1項ないし第8項のいずれかに記載の冷却液において、 前記防錆添加剤は前記冷却液を約100μS/cm未満の低導電率に維持する ことを特徴とする冷却液。
- 10.請求の範囲第1項ないし第9項のいずれかに記載の冷却液において、 前記防錆添加剤は特にアルミニウム材料に対して防錆性を有することを特徴と する冷却液。
 - 11.請求の範囲第1項に記載の冷却液において、

前記防錆添加剤は、ノニオン系物質であることを特徴とする冷却液。

20

12. 請求の範囲第11項に記載の冷却液において、

前記ノニオン系物質は、糖類および非イオン界面活性剤の少なくとも一方を含むことを特徴とする冷却液。

25 13. 請求の範囲第11項または第12項に記載の冷却液において、

前記冷却液は、イオン交換樹脂またはキレート樹脂を用いた冷却液浄化システムによって再生されることを特徴とする冷却液。

- 14.請求の範囲第1項ないし第13項のいずれかに記載の冷却液において、前記冷却液は脱酸素処理が施されていることを特徴とする冷却液。
- 15. 請求の範囲第1項ないし第13項のいずれかの請求項に記載の冷却液を燃料電池のスタック冷却回路に封入するための方法であって、

前記冷却液に対して脱酸素処理を施し、

5

- 10 脱酸素処理された前記冷却液を不活性ガスと共に前記冷却回路に封入する方法
 - 16. 燃料電池のスタック冷却システムであって、

請求の範囲第1項ないし第13項のいずれかに記載の冷却液と、

- 15 その冷却液と不活性ガスとが封入されている冷却回路とを備える燃料電池の冷却システム。
 - 17. 冷却液の浄化方法であって、

水を含む基剤を調整し、

20 前記冷却液の導電率を低導電率にて維持すると共に前記冷却液の水素イオン指数をほぼ中性に維持する防錆添加剤を調整し、

イオン交換樹脂またはキレート樹脂を用いて前記基剤と前記防錆添加剤との混合溶液の劣化物を再生する冷却液の浄化方法。

図1

		実施例1	実施例1 実施例2 実施例3 身	実施例3	実施例4	実施例5	長施例4 実施例5 実施例6 実施例7 実施例8 実施例9 比較例1 比較例2 比較例3 比較例4 比較例5 比較例6	実施例7	実施例8	実施例9	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6
	1/ーにり・ケくします	50.00	20.00	50.00	50.00	50.00	20.00	20.00	50.00	20.00	50.00	20.00	ı	1	ı	l
基	7。ロピレンク・リュール	-	1	1	1	-	_	1	_	-	_	-	50.00	1	ı	ı
	グリセリン	ı	ı	ì	1	ı	-	1	_	1	-	1	-	50.00	-	-
盔	イオン交換水	48.90	49.655	49.90	49.95	49.90	49.90	49.50	49.90	49.90	46.78	20.00	50.00	20.00	-	100.00
	水道水	-	-	1	1	1	1	_	_	-	1	-	1	-	100.00	1
	クエルセチン	ı	1	1	0.05	-	1	_	1	-	-	1	ı	1	1	1
	ケルコース(フト・ウ糖)	•	-	-	1	0.10	_	•	-	-	-	1	_	_	ı	-
	マルトース(麦芽糖)	-	ı	-	-	1	0.10	0.50	-	1	-	1	-	-	ı	1
	アルキルグ・ルコシト・	ı	1	_	_	1	-	1	0.10	-	-	.1	1		-	t
將	POEソルヒ・タンモノハ・ルミテート	t	-	ı	-	1	ı	ı	1	0.10	1	-	1	-	•	_
	トリエタノールアミン	1.00	0.34	1	ı	ı	l	ı	1	1	1	1	1	-	1	-
早	オルトリン酸	0.10			1	1	ı	1	1	-	0.20	1	-	1	_	_
	ホスホン酸	t	0.005	1	ı	1	1	ı	ı	ı	ı	ı	[ı	ı	1
蒸	ヘンソドリアゾール	ı	-	0.10	ı	1	-	ı.	1	ł	0.10	l	1	ı	ı	1
	硝酸十川ウム	١	-	-	1	1	1	ı	1	1	0.10	-	1	1	ı	-
	モリブデン酸ナトリウム	•	1	ı	ı	1	ı	ı	1	ı	0.20	l	ı	1	ı	1
	安息香酸扑り4	ı	_	-	ı	ı	1	ı	1	t	2.50	ı	1	1	t	-
	木酸化ナドリウム	ı	1	ı	ı	1	1	1	1	ı	0.12	1	ı	1	I	
~	水素イオン濃度指数(pH)	8.1	8.1	6.2	7~8	7~8	7∼8	7~8	7~8	7~8	7.3	6.8	6.8	6.8	6~7	6~7

図2

	実施例1	実施例1 実施例2 実施例3	実施例3	実施例4	実施例4 実施例5 実施例6 実施例7 実施例8 実施例9 比較例1	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	比較例1	比較例2	比較例2 比較例3 比較例4 比較例5	比較例4	比較例5	比較例6
電気伝導度 (μS/cm)	290	5.0	2.1	5.3	3.6	3.5	5.0	3.2	4.4	5950	3.5	9.1	1.8	286	0.88
金属防食性試験 Air	0.01	-0.04	0.04	-0.02	-0.02	-0.03	0.00	I	ı	-0.02	-0.12	-0.12	1	-0.52	0.10
o/gm)	-0.01	-0.04	0.15	0.01	-0.02	-0.01	-0.02	1	ı	-0.03	-0.10	-0.09	ļ	-0.43	0.10
金属防食性試験 N ₂ n=2 0.00	0.00	1	0.04	ı	ı	ı	I	1	ı	ı	I	0.02	_	1	l
AI腐食量(mg/cm²)	-0.01		0.05	J	1	I	1	1	i	I	I	0.04	ı	ļ	1
不導態化電流密度N ₂ (μA/cm²)	4.8	1	2.4	(7)	(15)	(16)	(16)	(09)	(80)	3.0	(100)	(100)	(100)	78	-
不導態化電流密度Air (μA/cm²)	2.4	12	2.4	ı	I	ſ	ı	I	ŀ	3.0	2.0	1.3	1	210	ı
凍結温度 (°C)	-35	-35	-35	-35	-35	-35	-35	-35	-35	-35	-35	-35	1	0	0

図3

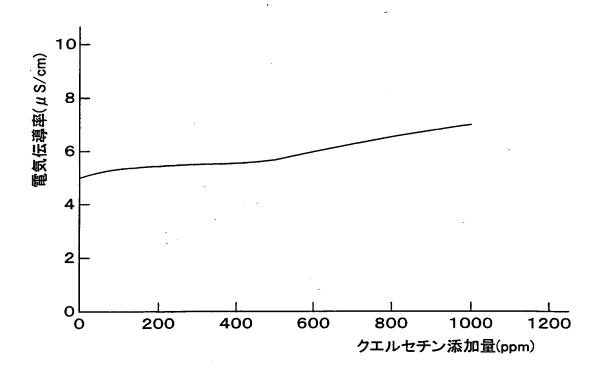
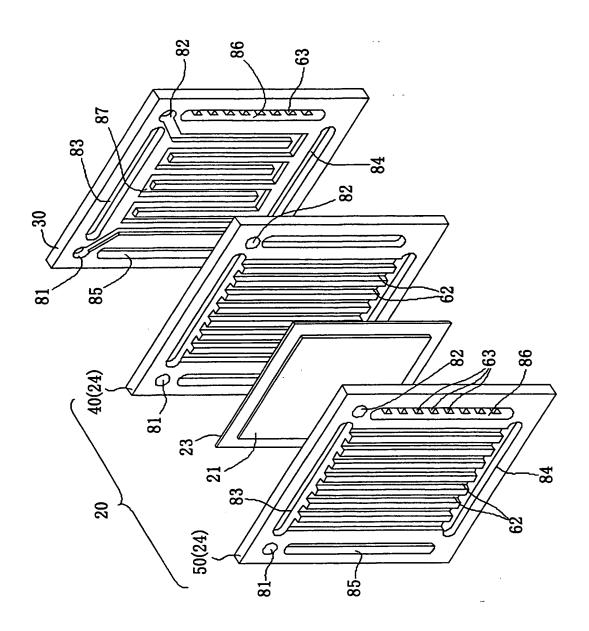


図4



THIS PAGE BLOOM

図5

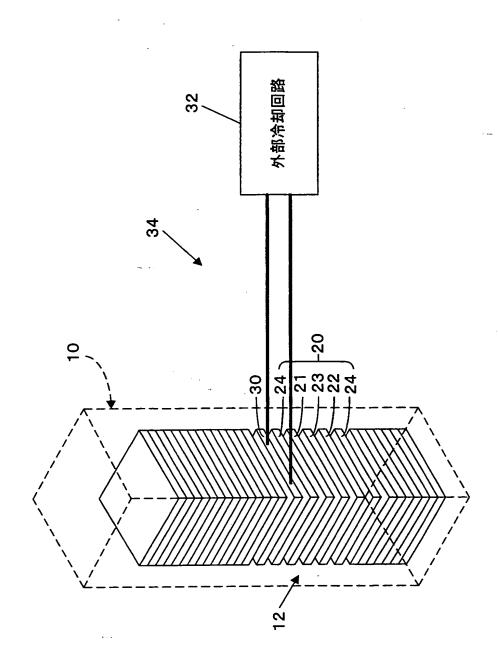
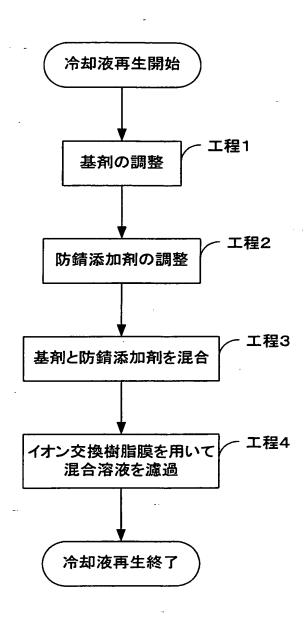


図6



PCT/JP00/06683

	SIFICATION OF SUBJECT MATTER C1 ⁷ C09K5/10, H01M8/02, C23F	11/10			
According t	o International Patent Classification (IPC) or to both na	tional classification and IPC			
B. FIELD	S SEARCHED		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
Minimum d Int .	ocumentation searched (classification system followed C1 ⁷ C09K5/10, H01M8/02, C23F	by classification symbols) 11/10			
Documentat	ion searched other than minimum documentation to the	extent that such documents are included	in the fields searched		
	ata base consulted during the international search (name	e of data base and, where practicable, sear	rch terms used)		
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	Citation of document, with indication, where ap		Relevant to claim No.		
X A	JP, 54-39389, A (Toyo Kogyo Co. 26 March, 1979 (26.03.79),	, Ltd.),	1-10 11-17		
	comparison example 1 (Family	: none)			
х	JP, 4-279690, A (Sekiyu Sangyo	Kasseika Center),	1-10		
A	05 October, 1992 (05.10.92), Par. No. 0006; working example 1; t	table 1 (Family: none)	11-17		
X	JP, 52-94880, A (NIPPON OIL COM	IPANY, LTD.),	1-10		
09 August, 1977 (09.08.77), Claims; working example 1; comparison example 1					
A	JP, 56-32581, A (ASAHI DENKA KO	OGYO K.K.),	1-17		
	02 April, 1981 (02.04.81), Claims; working example; compar (Family: none)	rison example			
A	JP, 2-21572, A (The Tokyo E)	Lectric Power Company,	1-17		
	Incorporated), 24 January, 1990 (24.01.90),		r		
	Claims (Family: none)				
Furthe	r documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.			
	categories of cited documents: ent defining the general state of the art which is not	"T" later document published after the inte			
conside	an defining the general state of the art which is not red to be of particular relevance document but published on or after the international filing	priority date and not in conflict with th understand the principle or theory unde "X" document of particular relevance; the o	erlying the invention		
date	ent which may throw doubts on priority claim(s) or which is	considered novel or cannot be considered step when the document is taken alone	red to involve an inventive		
cited to special	establish the publication date of another citation or other reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the considered to involve an inventive step	claimed invention cannot be when the document is		
means	ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	combined with one or more other such combination being obvious to a person	skilled in the art		
than the	ent published prior to the international filing date but later priority date claimed	"&" document member of the same patent i			
	actual completion of the international search December, 2000 (14.12.00)	Date of mailing f the internati nal sear 26 December, 2000 (2	ch report (6.12.00)		
	nailing address of the ISA/ nese Patent Office	Authorized officer	-		
Facsimile N	o.	Telephone No.			

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/06683

発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Int. C1'. C09K5/10, H01M8/02, C23F11/10 調査を行った分野 調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC)) Int. C17. C09K5/10, H01M8/02, C23F11/10 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語) WPI/L (QUESTEL) 関連すると認められる文献 引用文献の 関連する カテゴリー* 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 請求の範囲の番号 X JP, 54-39389, A(東洋工業株式会社) 26. 3月. 1979 (26. 03. 79) 1-10 比較例1 (ファミリーなし) 11-17 Α X JP, 4-279690, A(財団法人石油産業活性化センター) 1-10 5.10月.1992(05.10.92) 段落0006、実施例1、表1 (ファミリーなし) Α 11-17 JP, 52-94880, A(日本石油株式会社) 9.8月.1977(09.08.77) X 1-10 特許請求の範囲、実施例1、比較例1 11-17 |x| C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。 引用文献のカテゴリー の日の後に公表された文献 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 の理解のために引用するもの 以後に公表されたもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 文献(理由を付す) 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 よって進歩性がないと考えられるもの 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 「&」同一パテントファミリー文献 国際調査を完了した日 国際調査報告の発送日 26.12.00 14. 12. 00 国際調査機関の名称及びあて先 特許庁審査官(権限のある職員) 4 V 9155 田 日本国特許庁(ISA/JP) 藤原 浩子 郵便番号100-8915 電話番号 03-3581-1101 内線 3483 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/06683

C(続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 56-32581, A (旭電化工業株式会社) 2. 4月. 1981 (02. 04. 81) 特許請求の範囲、実施例、比較例 (ファミリーなし)	1-17
A	JP, 2-21572, A(東京電力株式会社) 24. 1月. 1990 (24. 01. 90) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-17
		·
	·	
	-	
	- -	

LHT

特許協力条約

PCT

国際予備審査報告

REC'D 13 JUL 2001
WIPO PCT

(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 PF14F480	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。
国際出願番号 PCT/JP00/06683	国際出願日 (日.月.年) 27.09.00 優先日 (日.月.年) 28.09.99
国際特許分類 (IPC) Int. Cl'. C09K5/	D, HO1M8/O2, C23F11/10
出願人(氏名又は名称) トヨタ自動	[株式会社
2. この国際予備審査報告は、この表紀	際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。 を含めて全部で 3 ページからなる。 属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審
	明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 E施細則第607号参照)
IV 開発明の単一性の欠如	と合む。 この利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 る新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるため
国際予備審査の請求書を受理した日 26.02.01	国際予備審査報告を作成した日 02.07.01
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目44	特許庁審査官(権限のある職員) 4V 9155 藤原 浩子 電話番号 03-3581-1101 内線 3483



I.	Ē	国際予備審査幸	製告の基	礎			_
1.	Ţ,		こ提出さ	れた差し替え用紙		れた。(法第6条(PCT おいて「出願時」とし、本	14条)の規定に基づく命令に 報告書には添付しない。
		出願時の国際	吳出顧書	類			
	x	明細書 明細書 明細書	第 第 第	1-21	ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と	
	x	請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲	第	11-17	項、 項、 項、 	出願時に提出されたもの PCT19条の規定に基 国際予備審査の請求書と 08.06.01	づき補正されたもの
	x	面図面 図面図	第	1-6		出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と)
		明細書の配列 明細書の配列 明細書の配列	引表の部	分 第	ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と	
2.	L	上記の出願書類	重の言語	は、下記に示す場合	合を除くほか、こ	の国際出願の言語である。	
]	国際調査	のために	言語である こ提出されたPCT (b) にいう国際公開の		- •	
3.	[_				は55.3にいう翻訳文の言語 おり、次の配列表に基づき	国際予備審査報告を行った。
		この国際コーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニーニ	出 出 、 、 提 が る 配 が る で え か で か で か で か で か で か で か で か で で か で か で で か で で か で か で で で で か で	含まれる書面による はに提出されたフレ 国際予備審査(また 国際予備審査(また と書面による配列表 と	配列表 キシブルディスク は調査)機関に抵 は調査)機関に抵 が出願時における	による配列表 出された書面による配列。 出されたフレキシブルデュ 国際出願の開示の範囲を表	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
4.		能正により、下 明細書 請求の範囲 図面		類が削除された。 第 	^{ページ} ^項 ペー	ジ/図	
5.		れるので、そ	の補正		のとして作成した。	, (PCT規則70.2(c) こ	囲を越えてされたものと認めら の補正を含む差し替え用紙は上
		·					





四 四 四 四 四 四 四 四 四 四 四 四 四 四 四 四 四 四 四		1.			0 0 0 3
V. 新規性、進歩性又は 文献及び説明	産業上の利用可能性	についての法第12条	(РСТЗ5条(2)) に	定める見解、そ	れを裏付ける
見解					
		,			
新規性(N)		請求の範囲 _ 請求の範囲	1-17		有 無
•					
進歩性(IS)		請求の範囲 _ 請求の範囲	1-17		有 無
		胡水炒起田 _	·		
産業上の利用可能性(I A)	請求の範囲	1-17		
		請求の範囲			無 ·
文献及び説明(PC)	丁規則70.7)				····
	- ,, - ,,				
国際調査報告に	こ列記されたい	ずれの文献にも、	「特定の防錆添	加剤を含む	」燃料電
国際調査報告に 池用冷却液」及び 脂を用いて再生す とって自明な事項	「特定の防錆剤	別を含む冷却剤を	、イオン交換樹脂	旨またはキ	レート樹
脂を用いて再生す とって自明な事項	る行却液の伊1 であるともいえ	ピカ缶」について さない。	記載されておりて	デ、また、	当業者に
よって、請求項	1-17に係る	5発明は、新規性	及び進歩性を有る	ける。	
				,	

請求の範囲

1. (補正後)燃料電池を冷却するための燃料電池用冷却液であって、水を含む基剤と、

前記燃料電池用冷却液の導電率を低導電率にて維持すると共に前記燃料電池用 5 冷却液の水素イオン指数をほぼ中性に維持する防錆添加剤とを含む燃料電池用冷 却液。

2.(補正後)請求の範囲第1項に記載の燃料電池用冷却液において、

前記基剤はさらに、グリコール類を含む混合溶液であることを特徴とする燃料 10 電池用冷却液。

3. (補正後)請求の範囲第1項または第2項に記載の燃料電池用冷却液において、

前記防錆添加剤は、弱アルカリ性添加剤および弱酸性添加剤のうち少なくとも 15 一方を含むことを特徴とする燃料電池用冷却液。

4. (補正後)請求の範囲第1項または第2項に記載の燃料電池用冷却液において、

前記防錆添加剤は、アルカリ性添加剤と酸性添加剤とを含むことを特徴とする 20 燃料電池用冷却液。

5. (補正後)請求の範囲第4項に記載の燃料電池用冷却液において、

前記アルカリ性添加剤はエタノールアミン系の物質であることを特徴とする燃料電池用冷却液。

6. (補正後)請求の範囲第5項に記載の燃料電池用冷却液において、

25

前記エタノールアミン系物質は、トリエタノールアミン、ジエタノールアミン 、およびモノエタノールアミンを含むことを特徴とする燃料電池用冷却液。

日本国特許庁 0.8.06.01

7. (補正後)請求が範囲第4項ないし第6項のいずれかに記載の燃料電池用冷却液において、

前記酸性添加剤はトリアゾール類、リン酸類および有機リン酸類から構成される群から選択されることを特徴とする燃料電池用冷却液。

5

8. (補正後)請求の範囲第1項ないし第7項のいずれかに記載の燃料電池用冷却液において、

前記防錆添加剤は前記燃料電池用冷却液を水素イオン指数約6~約9の範囲に 維持することを特徴とする燃料電池用冷却液。

10

9. (補正後)請求の範囲第1項ないし第8項のいずれかに記載の燃料電池用冷却液において、

前記防錆添加剤は前記燃料電池用冷却液を約100μS/cm未満の低導電率 に維持することを特徴とする燃料電池用冷却液。

15

10. (補正後)請求の範囲第1項ないし第9項のいずれかに記載の燃料電池用冷却液において、

前記防錆添加剤は特にアルミニウム材料に対して防錆性を有することを特徴とする燃料電池用冷却液。

20

11. 請求の範囲第1項に記載の冷却液において、

前記防錆添加剤は、ノニオン系物質であることを特徴とする冷却液。

- 12. 請求の範囲第11項に記載の冷却液において、
- 25 前記ノニオン系物質は、糖類および非イオン界面活性剤の少なくとも一方を含むことを特徴とする冷却液。

13. 請求の範囲第11項または第12項に記載の冷却液において、



PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 PF14F480	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。
国際出願番号 PCT/JP00/06683	国際出願日 (日.月.年) 27.09.00 優先日 (日.月.年) 28.09.99
出願人 (氏名又は名称) トヨタ [自動車株式会社
国際調査機関が作成したこの国際調3 この写しは国際事務局にも送付される	査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。 る。
この国際調査報告は、全部で 3	<i>ペ</i> ージである。
この調査報告に引用された先行打	支術文献の写しも添付されている。
	くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。 れた国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。
□ この国際出願に含まれる書	<i>,</i>
	れたフレキシブルディスクによる配列表 関に提出された書面による配列表
□ 出願後に、この国際調査機 □ 出願後に提出した書面によ 書の提出があった。	関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 る配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述
□ 書面による配列表に記載し 書の提出があった。	た配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述
2. 請求の範囲の一部の調査を	ができない(第I欄参照)。
3. 第明の単一性が欠如してい	いる(第Ⅱ欄参照)。
4. 発明の名称は 🗓 出版	頭人が提出したものを承認する。
	こ示すように国際調査機関が作成した。
	頭人が提出したものを承認する。
] [] [] [] [] [] [] [] [] [] [II欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により 祭調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこ 国際調査機関に意見を提出することができる。
6. 要約書とともに公表される図は、 第 <u>5</u> 図とする。 X 出版	
出	類人は図を示さなかった。
本[図は発明の特徴を一層よく表している。

Α.	発明の属する分野の分類	(国際特許分類	(IPC))

Int. Cl⁷. C09K5/10, H01M8/02, C23F11/10

調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. C17. C09K5/10, H01M8/02, C23F11/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L (QUESTEL)

C.	関連す	る	上語	忍め	られ	る文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	JP, 54-39389, A(東洋工業株式会社) 26.3月.1979 (26.03.79) 比較例1 (ファミリーなし)	1-10 11-17
X A	JP, 4-279690, A(財団法人石油産業活性化センター) 5. 10月. 1992(05. 10. 92) 段落0006、実施例1、表1 (ファミリーなし)	1-10 11-17
X	JP, 52-94880, A(日本石油株式会社)9.8月.1977(09.08.77) 特許請求の範囲、実施例1、比較例1	1-10 11-17

|x| C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

- * 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 国際調査報告の発送日 26.12.00 14.12.00 特許庁審査官(権限のある職員) 9 1 5 5 国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 藤原 浩子 郵便番号100-8915 電話番号 03-3581-1101 内線 3483 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

国際出願番

PCT/JP00/06683

C (続き) . 引用文献の	関連すると認められる文献	関連する
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
A	JP, 56-32581, A(旭電化工業株式会社) 2.4月.1981 (02.04.81) 特許請求の範囲、実施例、比較例 (ファミリーなし)	1-17
A	JP, 2-21572, A (東京電力株式会社) 24. 1月. 1990 (24. 01. 90) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-17
·		
	·	, i
× .		÷
		,
		, ·

PF14F480

TRANSLATION OF JAPANESE REQUEST

PCT REQUEST

0 For receiving Office use only 0-1 International Application No. International Filing Date 0-2 Name of receiving Office and "PCT 0-3 International Application" Form - PCT/RO/101 PCT Request 0-4 0-4-1 Prepared using PCT-EASY Version 2.91 (updated 01.07.2000) 0-5 Petition The undersigned requests that the present international application be processed according to the Patent Cooperation Treaty 0-6 Receiving Office (specified by the Japan Patent Office (RO/JP) applicant) 0-7 Applicant's or agent's file reference PF14F480 Title of invention COOLANT, METHOD OF ENCLOSING COOLANT, AND COOLING SYSTEM TI. Applicant II-1 This person is: applicant only 11-2 Applicant for all designated States except US 11-4 Name TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA 11-5 Address: Toyota-cho, Toyota-shi, Aichi 471-8571 Japan 11-6 State of nationality JΡ 11-7 State of residence JР 11-8 Telephone No. 0565-28-2121 11-9 Facsimile No. 0565-23-5748

PCT REQUEST

III-1	Applicant and/or inventor				
III-1-1	This person is:	applicant and inventor			
III-1-2	Applicant for	US only			
III-1-4	Name (LAST, First)	NISHII, Mikito			
III-1-5	Address:	C/O TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA			
111-1-0	Address.	1,			
		Toyota-cho, Toyota-shi, Aichi 471-8571			
		Japan			
III-1-6	State of nationality	JP			
III-1-7	State of residence	JP			
III-2	Applicant and/or inventor				
III-2-1	This person is:	applicant and inventor			
III-2-2	Applicant for	US only			
III-2-4	Name (LAST, First)	TANIKAWA, Masamine			
III-2-5	Address:	C/O TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA			
20	, tod. 655.	1,			
		Toyota-cho, Toyota-shi, Aichi 471-8571			
		Japan			
111-2-6	State of nationality	JP			
III-2-7	State of residence	JP			
III-3	Applicant and/or inventor				
III-3-1	This person is:	applicant and inventor			
III-3-2	Applicant for	US only			
III-3-4	Name (LAST, First)	WATANABE, Hisanori			
111-3-5	Address:	C/O JAPAN CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD.			
		813, Kikkawa			
		Shimizu-shi, Shizuoka 424-8558			
		Japan			
III-3-6	State of nationality	JP			
III-3-7	State of residence	JP			
III-4	Applicant and/or inventor				
III-4 III-4-1	Applicant and/or inventor This person is:	applicant and inventor			
	1	applicant and inventor US only			
III-4-1	This person is:				
III-4-1 III-4-2	This person is: Applicant for	US only			
-4-1 -4-2 -4-4	This person is: Applicant for Name (LAST, First)	US only KUROKAWA, Yoshihisa c/o JAPAN CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD. 813, Kikkawa			
III-4-1 III-4-2 III-4-4	This person is: Applicant for Name (LAST, First)	US only KUROKAWA, Yoshihisa c/o JAPAN CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD.			
III-4-1 III-4-2 III-4-4	This person is: Applicant for Name (LAST, First)	US only KUROKAWA, Yoshihisa c/o JAPAN CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD. 813, Kikkawa			
-4-1 -4-2 -4-4	This person is: Applicant for Name (LAST, First)	US only KUROKAWA, Yoshihisa c/o JAPAN CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD. 813, Kikkawa Shimizu-shi, Shizuoka 424-8558			

PCT REQUEST

III-5	Applicant and/or inventor	
III-5-1	This person is:	applicant and inventor
111-5-2	Applicant for	US only
III-5-4	Name (LAST, First)	SUGIYAMA, Satoshi
111-5-5	Address:	c/o JAPAN CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD.
		813, Kikkawa
		Shimizu-shi, Shizuoka 424-8558
		Japan
III-5-6	State of nationality	JP
III-5-7	State of residence	JP
III-6	Applicant and/or inventor	
III-6-1	This person is:	applicant and inventor
III-6 - 2	Applicant for	US only
III-6-4	Name (LAST, First)	YAEDA, Kazuhito
III-6-5	Address:	c/o JAPAN CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD.
		813, Kikkawa
		Shimizu-shi, Shizuoka 424-8558
	<u> </u>	Japan
III-6-6	State of nationality	JP
III-6-7	State of residence	JP
IV-1	Agent or common representative; or address for correspondence The person identified below is hereby/has been appointed to act on behalf of the applicant(s) before the competent International Authorities as:	agent
IV-1-1	Name (LAST, First)	IGARASHI, Takao
IV-1-2	Address:	Chuo Fushimi Building 3F
		3-2, Nishiki 1-chome, Naka-ku
		Nagoya-shi, Aichi 460-0003
		Japan
IV-1-3	Telephone No.	052-218-5061
IV-1-4	Facsimile No.	052-218-5064
IV-1-5	e-mail	igarashi@meisei.gr.jp
IV-2	Additional agent(s)	additional agent(s) with same address as
0403	No. 10 (a)	first named agent
IV-2-1	Name(s)	SHIMOIDE, Takashi
V	Designation of States	
V-1	Regional Patent (other kinds of protection or treatment, if any, are specified between parentheses after the designation(s) concerned)	EP: AT BE CH&LI CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE and any other State which is a Contracting State of the European Patent Convention and of the PCT

PCT REQUEST

V-2	National Patent (other kinds of protection or treatment, if any, are specified between parentheses after the designation(s)	CA US
	concerned)	
V-5	Precautionary Designation Statement	
	In addition to the designations made under items V-1, V-2 and V-3, the applicant also makes under Rule 4.9(b) all designations which would be permitted under the PCT except any designation(s) of the State(s) indicated under item V-6 below. The applicant declares that those additional designations are subject to confirmation and that any designation which is not confirmed before the expiration of 15 months from the priority date is to be regarded as withdrawn by the applicant	
V-6	at the expiration of that time limit. Exclusion(s) from precautionary	NONE
VI-1	designations Priority claim of earlier national	
	application	7 1 1000 (20 00 1000)
VI-1-1	Filing date	28 September 1999 (28.09.1999)
VI-1-2	Number	Patent Application 11-273813
VI-1-3	Country	JP
VI-2	Priority claim of earlier national application	
VI-2-1	Filing date	13 June 2000 (13.06.2000)
VI-2-2	Number	Patent Application 2000-176464
VI-2-3	Country	JP
VI-3	Priority document request	
	The receiving Office is requested to prepare and transmit to the International Bureau a certified copy of the earlier application(s) identified above as item(s):	VI-1, VI-2
VII-1	International Searching Authority Chosen	Japan Patent Office (JPO) (ISA/JP)
VIII	Declarations	Number of declarations
VIII-1	Declaration as to the identity of the inventor	-
VIII-2	Declaration as to the applicant's entitlement, as at the international filing	-
	date, to apply for and be granted a patent	
VIII-3	Declaration as to the applicant's entitlement, as at the international filing date, to claim the priority of the earlier	-
VIII-4	application Declaration of inventorship (only for the purposes of the designation of the United States of America)	-
VIII-5	United States of America) Declaration as to non-prejudicial disclosures or exceptions to lack of novelty	_

PF ₁	4F	480
-----------------	----	-----

TX	Check list	number of sheets	electronic file(s) attached	
IX-1	Request (including declaration sheets)	6	_	
IX-2	Description	21	-	
IX-3	Claims	3	-	
IX-4	Abstract	1	pf14f480.txt	
IX-5	Drawings	6	-	
IX-7	TOTAL	37		
	Accompanying items	paper document(s) attached	electronic file(s) attached	
IX-8	Fee calculation sheet	√	-	
IX-9	Original separate power of attorney	√	-	
IX-17	PCT-EASY diskette	-	Diskette	
IX-18	Other (specified):	Revenue stamps of	-	
		transmittal fee and		
		search fee		
IX-18	Other (specified):	Submission of	-	
		certificate of		
		payment for		
		international fee		
IX-19	Figure of the drawings which should accompany the abstract	5		
IX-20	Language of filing of the international application	Japanese		
X-1	Signature of applicant, agent or common representative			
X-1-1	Name (LAST, First)	IGARASHI, Takao		
X-2	Signature of applicant, agent or common representative			
X-2-1	Name (LAST, First)	SHIMOIDE, Takashi		

FOR RECEIVING OFFICE USE ONLY

10-1	Date of actual receipt of the purported international application	
10-2	Drawings:	
10-2-1	Received	
10-2-2	Not received	
10-3	Corrected date of actual receipt due to later but timely received papers or drawings completing the purported international application	
10-4	Date of timely receipt of the required corrections under PCT Article 11(2)	
10-5	International Searching Authority	ISA/JP
10-6	Transmittal of search copy delayed until search fee is paid	

6/6

PCT REQUEST

PF14F480

FOR INTERNATIONAL BUREAU USE ONLY

11-1	Date of receipt of the record copy by			
	the International Bureau	 	 	